

# 光核反応を利用するチタン,ゲルマニウム,タンタル その他の放射化分析法に関する研究

著者	阿部 重喜
号	129
発行年	1966
URL	<a href="http://hdl.handle.net/10097/23287">http://hdl.handle.net/10097/23287</a>

氏名・（本籍）	あ　　べ　　しげ　　き 阿　　部　　重　　喜
学　位　の　種　類	理　　学　　博　　士
学　位　記　番　号	理　　第　　1　　2　　9　　号
学位授与年月日	昭和 4 1 年 9 月 2 1 日
学位授与の要件	学位規則第 5 条第 2 項該当
最　終　学　歴	昭和 33 年 3 月 山形大学工学部応用化学科卒業
学　位　論　文　題　目	光核反応を利用するチタン，ゲルマニウム， タンタルその他の放射化分析法に関する研究
論　文　審　査　委　員	（主査） 教　授　岡　　好　良　教　授　塩　川　孝　信 教　授　斎　藤　一　夫

## 論　文　目　次

- 第 1 章 緒　　論
- 第 2 章 （ $\gamma$ ， $n$ ）反応を利用するニオブ中のタンタルの定量
- 第 3 章 （ $\gamma$ ， $p$ ）反応を利用するタンタル中のチタンの定量
- 第 4 章 （ $\gamma$ ， $p$ ）反応を利用する鉄中のチタンの定量
- 第 5 章 （ $\gamma$ ， $p$ ）および（ $\gamma$ ， $\alpha$ ）反応を利用するバナジウム中のチタンの定量
- 第 6 章 （ $\gamma$ ， $n$ ）反応を利用するチタンおよび鉄中のゲルマニウムの定量
- 第 7 章 （ $\gamma$ ， $n$ ）反応を利用する鉛中のストロンチウムの定量
- 第 8 章 （ $\gamma$ ， $n$ ）反応を利用するカルシウムおよびバリウム中のストロンチウムの定量
- 第 9 章 （ $\gamma$ ， $n$ ）反応を利用する塩化物－臭化物混合体中の各自の定量
- 第 10 章 （ $\gamma$ ， $n$ ）反応を利用する塩化物および臭化物中のヨウ素の定量

# 論 文 内 容 要 旨

## 第 1 章 緒 論

近年、わが国においても各種の大型加速器が各地に設置され、放射化分析の分野においても広く利用されるようになった。放射化分析法のなかでも  $\gamma$  線あるいは荷電粒子を用いる方法は原子炉内で行われる熱中性子放射化法に較べて、研究が立遅れているのが現状である。 $(\gamma, n)$  あるいは  $(\gamma, p)$  などの光核反応を利用する放射化法は熱中性子による方法とは異ったいくつかの特異性が期待され、放射化分析法のなかの一方法として今後さらに発展する可能性がある。

本研究においては、主として電子線型加速器で得られる 20MeV の制動輻射を用いて、光核反応の残留核に関する基礎的な検討を行い、放射化分析の立場から考察を行った。その結果をもとにしてチタン、ゲルマニウム、タンタル、アルカリ土類金属元素およびハロゲン元素などの放射化を試み、これらの各元素について非破壊による定量法を確立した。

本章では光核反応を利用する放射化法の特異性に着目して、核反応収率の立場から  $(\gamma, n)$ ,  $(\gamma, p)$ ,  $(\gamma, 2n)$  および  $(\gamma, \alpha)$  反応などによる放射化法を比較し、検討を行った。次に実際に放射化分析を行う際の照射条件を明らかにし、 $\gamma$  線を利用する放射化分析において最も問題になる照射した  $\gamma$  線の線束強度の校正に内部モニター法が適用できることを示した。

## 第 2 章 $(\gamma, n)$ 反応を利用するニオブ中のタンタルの定量

ベータトロンで得られる 20MeV の制動輻射を用いてニオブおよびタンタルの放射化を試み、残留核の壊変曲線からニオブ・タンタル混合物中のタンタルの定量が可能であることを見出した。さらに電子線型加速器を利用してニオブおよびタンタルの残留核に関する基礎的な検討を行い、ニオブ中の微量タンタルを非破壊定量する方法を確立した。

20MeV の  $\gamma$  線で 1 時間照射したニオブおよびタンタルでは、残留核の  $\gamma$  線スペクトルから  $^{93}\text{Nb}$  ( $\gamma, n$ )  $^{92}\text{Nb}$  および  $^{181}\text{Ta}(\gamma, n)^{180\text{m}}\text{Ta}$  の核反応が確認された。ニオブ中のタンタルの定量には、 $^{92}\text{Nb}$  (半減期 10.1 日) を線束強度の内部モニターとし  $^{180\text{m}}\text{Ta}$  の放射能強度を測定した。

酸化ニオブと酸化タンタルの混合試料 50mg を 1 時間照射して得られた残留核の放射能計数率比、 $R_A$  ( $=^{180\text{m}}\text{Ta}$ , 0.06MeV/ $^{92}\text{Nb}$ , 0.93MeV) と混合重量比、 $R_w$  ( $=\text{Ta/Nb}$ ) との関係求めたところ、両者の間にはよい直線関係が得られた。

本法によってニオブ中に含まれる  $10^{-2}\%$  程度以上のタンタルを非破壊定量できる。なおニオブ試

料中にチタンが共存する場合の影響も検討した。

### 第 3 章 $(\gamma, p)$ 反応を利用するタンタル中のチタンの定量

$(\gamma, n)$  および  $(\gamma, p)$  反応を利用してチタンの放射化を試み、残留核の  $\gamma$  線スペクトルおよび衰変曲線を測定した。その結果をもとにしてタンタル中のチタンを非破壊定量するための基礎的な条件を検討した。

20MeVの  $\gamma$  線で1時間照射したチタンでは  $^{46}\text{Ti}(\gamma, n)^{45}\text{Ti}$  によって  $^{45}\text{Ti}$  (半減期3.07時間) が生成する他に、 $^{48}\text{Ti}(\gamma, p)^{47}\text{Sc}$  および  $^{49}\text{Ti}(\gamma, p)^{48}\text{Sc}$  が確認された。 $^{47}\text{Sc}$  (半減期3.43日) では0.16 MeVに、 $^{48}\text{Sc}$  (半減期44時間) では1.02MeV および 1.32MeV にそれぞれ顕著な光電ピークが観測された。

チタンの定量には  $^{47}\text{Sc}$  を利用し、 $^{180\text{m}}\text{Ta}$  を照射した  $\gamma$  線の線束強度の内部モニターとした。酸化タンタルと酸化チタンの混合試料 50mg を1時間照射して得られた残留核の放射能計数率比、 $R_A (= ^{47}\text{Sc}, 0.16\text{MeV} / ^{180\text{m}}\text{Ta}, 0.06\text{MeV})$  と混合重量比、 $R_w (= \text{Ti}/\text{Ta})$  との関係求めたところ、両者の間にはよい直線関係が得られた。

本法によってタンタル中に含まれる0.1%程度以上のチタンを非破壊定量できる。なお  $^{47}\text{Sc}$  の生成反応についても考察を行った。

### 第 4 章 $(\gamma, p)$ 反応を利用する鉄中のチタンの定量

第3章において検討した  $(\gamma, p)$  反応を利用するチタンの放射化分析法を鉄試料へ適用し、鉄中のチタンを非破壊定量する方法を確立した。

$\gamma$  線で照射した鉄では、照射直後の  $\gamma$  線スペクトルにおいて  $^{54}\text{Fe}(\gamma, n)^{53}\text{Fe}$  にもとづく  $^{53}\text{Fe}$  (半減期8.9分) の光電ピークが観測され、同時に  $^{57}\text{Fe}(\gamma, p)^{56}\text{Mn}$  で生成した  $^{56}\text{Mn}$  の顕著な光電ピークが 0.85MeV, 1.81MeV および 2.13MeV に認められた。

鉄中のチタンの定量には、主成分の鉄から  $(\gamma, p)$  反応によって生成する  $^{56}\text{Mn}$  を照射  $\gamma$  線の線束強度の内部モニターとした。

酸化鉄と酸化チタンの混合試料 50mg を1時間照射して得られた残留核の放射能計数率比、 $R_A (= ^{47}\text{Sc}, 0.16\text{MeV} / ^{56}\text{Mn}, 0.85\text{MeV})$  と混合重量比、 $R_w (= \text{Ti}/\text{Fe})$  との関係求めたところ、

両者の間にはよい直線関係が得られた。

本法によって鉄中に含まれる0.1%程度以上のチタンを非破壊定量できる。

## 第 5 章 $(\gamma, p)$ および $(\gamma, \alpha)$ 反応を利用するバナジウム中のチタンの定量

光核反応を利用してバナジウムの放射化を試み、バナジウムの  $(\gamma, \alpha)$  反応について相対的核反応収率を求めた。さらにその結果をもとにしてバナジウム中のチタンを非破壊定量する方法を確立した。

20MeV の  $\gamma$  線で1時間照射したバナジウムでは、残留核の  $\gamma$  線スペクトルおよび壊変曲線から  $^{51}\text{V}(\gamma, \alpha)^{47}\text{Sc}$  にもとづく  $^{47}\text{Sc}$  の生成が確認された。核反応収率の測定には鉄から  $^{57}\text{Fe}(\gamma, p)^{56}\text{Mn}$  によって生成する  $^{56}\text{Mn}$  を内部モニターとして試料に照射した  $\gamma$  線の線束強度を校正し、 $^{48}\text{Ti}(\gamma, p)^{47}\text{Sc}/^{51}\text{V}(\gamma, \alpha)^{47}\text{Sc}$  の相対的収率を求めた結果、 $35.6 \pm 0.6$  (20MeV  $\gamma$  線) の値が得られた。

酸化バナジウムと酸化チタンの混合試料に既知重量の酸化鉄を添加したのち、1時間照射して得られた残留核の放射能計数率比、 $R_A$  と混合重量比、 $R_w$  との関係を検討して、両者の間の関係式を導いた。

本法によってバナジウム中に含まれる数%～数10%のチタンを容易に非破壊定量できる。

## 第 6 章 $(\gamma, n)$ 反応を利用するチタンおよび鉄中のゲルマニウムの定量

$(\gamma, n)$  反応を利用してゲルマニウムの放射化を試み、残留核の  $\gamma$  線スペクトルおよび壊変曲線を測定した。その結果をもとにしてチタンおよび鉄中のゲルマニウムを非破壊定量する方法を確立した。

ゲルマニウムの残留核では  $\gamma$  線スペクトルから  $^{76}\text{Ge}(\gamma, n)^{75}\text{Ge}$  および  $^{70}\text{Ge}(\gamma, n)^{69}\text{Ge}$  が確認された。0.26MeV の  $^{75}\text{Ge}$  (半減期82分) の光電ピークが消滅したのちでは、0.51MeV, 0.88MeV, 1.12MeV および 1.34MeV に  $^{69}\text{Ge}$  (半減期40.4時間) の光電ピークが観測された。

酸化チタンと酸化ゲルマニウム および 酸化鉄と酸化ゲルマニウムの混合試料 50mg を 1 時間照射して得られた残留核の放射能計数率比、 $R_A$  ( $=^{69}\text{Ge}$ , 0.51MeV/ $^{47}\text{Sc}$ , 0.16MeV あるいは  $^{69}\text{Ge}$ , 0.51MeV/ $^{56}\text{Mn}$ , 0.85 MeV) と混合重量比、 $R_w$  ( $=\text{Ge}/\text{Ti}$  あるいは  $\text{Ge}/\text{Fe}$ ) との関係を求めたところ、両者の間にはよい直線関係が得られた。

本法によってチタンあるいは鉄中に含まれる0.1%程度以上のゲルマニウムは非破壊定量できる。

## 第 7 章 $(\gamma, n)$ 反応を利用する鉛中のストロンチウムの定量

$(\gamma, n)$  反応を利用してストロンチウムおよび鉛の放射化を試み、残留核の  $\gamma$  線スペクトルおよび壊変曲線を測定した。その結果をもとにして鉛中のストロンチウムを非破壊定量する方法を確立した。

ストロンチウムでは残留核の  $\gamma$  線スペクトルから、 $^{86}\text{Sr}(\gamma, n)^{85\text{m}}\text{Sr}$ ,  $^{88}\text{Sr}(\gamma, n)^{87\text{m}}\text{Sr}$  などの核反応が確認された。 $0.22\text{MeV}$  の  $^{85\text{m}}\text{Sr}$  (半減期70分) の光電ピークが消滅したのちでは  $0.39\text{MeV}$  に  $^{87\text{m}}\text{Sr}$  (半減期2.84時間) の顕著な光電ピークが観測され、その他に  $^{85}\text{Sr}$  (半減期85日) の生成も確かめられた。

鉛では  $^{204}\text{Pb}(\gamma, n)^{203}\text{Pb}$  にもとづく  $^{203}\text{Pb}$  (半減期52時間) の光電ピークが  $0.07\text{MeV}$ ,  $0.28\text{MeV}$  などに観測された。

硫酸鉛と硫酸ストロンチウムの混合試料  $200\text{mg}$  を 30分間照射して得られた残留核の放射能計数率比,  $R_A (= ^{87\text{m}}\text{Sr}, 0.39\text{MeV} / ^{203}\text{Pb}, 0.28\text{MeV})$  と混合重量比,  $R_w (= \text{Sr}/\text{Pb})$  との関係を求めたところ、両者の間にはよい直線関係が得られた。

本法によって鉛中に含まれる数%以上のストロンチウムは非破壊定量できる。

## 第 8 章 $(\gamma, n)$ 反応を利用するカルシウムおよびバリウム中のストロンチウムの定量

$(\gamma, n)$  および  $(\gamma, p)$  反応を利用してアルカリ土類金属元素の放射化を試み、残留核の  $\gamma$  線スペクトルおよび壊変曲線を測定した。その結果をもとにしてカルシウムおよびバリウム中のストロンチウムを非破壊定量する方法を確立した。

カルシウムでは残留核の  $\gamma$  線スペクトルから  $^{44}\text{Ca}(\gamma, p)^{43}\text{K}$ ,  $^{48}\text{Ca}(\gamma, n)^{47}\text{Ca}$  などの核反応が確認された。 $^{43}\text{K}$  (半減期22.4時間) の  $0.37\text{MeV}$  および  $0.62\text{MeV}$  の光電ピークが消滅したのちでは、 $1.30\text{MeV}$  に  $^{47}\text{Ca}$  (半減期4.8日) の光電ピークが認められ、そのほか  $0.16\text{MeV}$  に光電ピークが観測された。 $0.16\text{MeV}$  の光電ピークは  $^{47}\text{Ca} \xrightarrow{\beta^-} ^{47}\text{Sc}$  にもとづく  $^{47}\text{Sc}$  の  $\gamma$  線と同定された。バリウムでは  $^{136}\text{Ba}(\gamma, n)^{135\text{m}}\text{Ba}$  にもとづく  $^{135\text{m}}\text{Ba}$  の光電ピークが  $0.27\text{MeV}$  に観測された。

硫酸カルシウムと硫酸ストロンチウムおよび硫酸バリウムと硫酸ストロンチウムの混合試料をそ

それぞれ30分間照射し、得られた残留核の放射能計数率比,  $R_A (= {}^{87m}\text{Sr}, 0.39\text{MeV}/{}^{43}\text{K}, 0.37\text{MeV}$  あるいは  ${}^{87m}\text{Sr}, 0.39\text{MeV}/{}^{135m}\text{Ba}, 0.27\text{MeV})$  と混合重量比,  $R_w (= \text{Sr}/\text{Ca}$  あるいは  $\text{Sr}/\text{Ba})$  との関係求めたところ、両者の間にはよい直線関係が得られた。

本法によってカルシウムおよびバリウム中に含まれる0.1%程度以上のストロンチウムは非破壊定量できる。

## 第9章 $(\gamma, n)$ 反応を利用する塩化物—臭化物混合体中の各自の定量

$(\gamma, n)$  反応を利用してハロゲン元素の放射化を試み、残留核の $\gamma$ 線スペクトルおよび壊変曲線を測定した。その結果をもとにして塩化物—臭化物混合体中の各自の定量法を確立した。

塩化物では残留核の $\gamma$ 線スペクトルから  ${}^{35}\text{Cl}(\gamma, n){}^{34m}\text{Cl}$  が確認され、0.15MeV に  ${}^{34m}\text{Cl}$  (半減期32.4分) の顕著な光電ピークが観測された。

臭化物では  ${}^{81}\text{Br}(\gamma, n){}^{80m}\text{Br}$ ,  ${}^{81}\text{Br}(\gamma, n){}^{80}\text{Br}$ ,  ${}^{79}\text{Br}(\gamma, 2n){}^{77}\text{Br}$  などの核反応が確認された。 ${}^{80m}\text{Br} \rightarrow {}^{80}\text{Br}$  の0.62MeV 光電ピークが消滅したのちでは、0.23MeV に  ${}^{77}\text{Br}$  (半減期58時間) の光電ピークが見られた。

塩化ナトリウムと臭化ナトリウムの混合試料10mgを10分間照射して得られた残留核の放射能計数率比,  $R_A (= {}^{34m}\text{Cl}, 0.15\text{MeV}/{}^{80}\text{Br}, 0.62\text{MeV})$  と混合重量比,  $R_w (= \text{Cl}/\text{Br})$  との関係求めたところ、両者の間にはよい直線関係が得られた。

本法によって塩化物—臭化物混合体中の数%～数10%の塩素を非破壊定量できる。なおフッ化物が共存する場合の影響についても検討した。

## 第10章 $(\gamma, n)$ 反応を利用する塩化物および臭化物中のヨウ素の定量

第9章に引続き、 $(\gamma, n)$  反応を利用してヨウ素の放射化を試み、残留核の $\gamma$ 線スペクトルおよび壊変曲線を測定した。その結果をもとにして塩化物および臭化物中のヨウ素を非破壊定量する方法を確立した。

ヨウ化物では残留核の $\gamma$ 線スペクトルから  ${}^{127}\text{I}(\gamma, n){}^{126}\text{I}$  にもとづく  ${}^{126}\text{I}$  (半減期13.3日) の生成が確認され、0.38MeV, 0.67MeV, 0.86MeV などに  ${}^{126}\text{I}$  の顕著な光電ピークが観測された。

塩化物とヨウ化物および臭化物とヨウ化物の混合試料50mgを1時間照射して得られた残留核の

放射能計数率比,  $R_A^\circ (= {}^{126}\text{I}, 0.38\text{MeV}/{}^{34}\text{mCl}, 0.15\text{MeV}$  あるいは  ${}^{126}\text{I}, 0.38\text{MeV}/{}^{80}\text{Br}, 0.62\text{MeV})$  と混合重量比,  $R_w (= \text{I/Cl}$  あるいは  $\text{I/Br})$  との関係を求めたところ, 両者の間にはよい直線関係が得られた。

本法によって塩化物あるいは臭化物中に含まれる  $10^{-2}\%$  程度以上のヨウ素を非破壊定量できる。



## 論文審査結果の要旨

阿部重喜氏の提出した学位論文は「光核反応を利用するチタン、ゲルマニウム、タンタル、その他の放射化分析法に関する研究」と題するもので10章からなっている。

第1章は緒論で本研究の目的及びその意義について論じた。

ベータートロン又は電子線型加速器を用いて 20 MeV の  $\gamma$  線で照射すれば、Nb-93 ( $\gamma, n$ ) Nb-92, Ta-181 ( $\gamma, n$ ) Ta-180m の反応によって Nb-92, Ta-180m を生成することが確認された。この際半減期 10.1 d の Nb-92 を線束強度のモニターとして Ta-180m の放射能強度を測定すれば放射能強度比,  $R_A$  (Ta-180m, 0.06 MeV / Nb-92, 0.93 MeV) と重量比,  $R_w$  (Ta / Nb) との間には直線関係が得られ、ニオブ中の 0.01 % 程度までのタンタルを非破壊定量することを得た。(第2章)

同様に ( $\gamma, n$ ) 反応を利用してチタン或いは鉄中の 0.1 % 程度のゲルマニウム (第6章)、鉛中の数 % のストロンチウム (第7章)、カルシウム及びバリウム中の 0.1 % のストロンチウム (第8章)、塩化物-臭化物混合体中の各自 (第9章) 及び塩化物あるいは臭化物中の 0.01 % 程度のヨウ素を非破壊定量することを得た。( $\gamma, p$ ) 反応を利用すれば例えば Ti-84 よりは Sc-47 が得られその半減期は 3.43 d で 0.16 MeV に顕著な光電ピークがみられる。これを利用し、Ta-181 より得られる Ta-180m を  $\gamma$  線束強度の内部モニターとすればタンタル中の 0.1 % 程度のチタンを非破壊定量することが出来る (第3章)。同様にして鉄中の微量のチタンも非破壊定量することが出来た (第4章)。ただしこの場合は主成分の鉄から ( $\gamma, p$ ) 反応によって生成する Mn-56 を  $\gamma$  線束強度のモニターとした。

さらにバナジウムを 20 MeV の  $\gamma$  線で照射すれば V-51 ( $\gamma, \alpha$ ) Sc-47 によって Sc-47 が生成することを確認し、Ti-48 ( $\gamma, p$ ) Sc-47 との相対的収率を求め、バナジウム中のチタンの非破壊定量法を確立した (第5章)。ただし  $\gamma$  線束強度は既知量を加えた鉄を以て校正した。

従来放射化分析に於いては殆んどすべて熱中中性子による ( $n, \gamma$ ) 反応を利用していた。光核反応を利用した例は極めて少なく、本研究はその立ち遅れた分野を開拓したもので寄与する処多く、また甚だ興味ある事実を明らかにした。

5 編の参考論文もまた分析化学上価値あるものである。

なお化学専攻の教官多数の出席の下にこれを発表せしめ、その内容に関し試問に答えしめた。その結果を総合し審査員一同は阿部重喜氏が提出した論文は理学博士の論文として合格と認めた。